



① BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **G brauchsmust r**
⑩ **DE 298 02 444 U 1**

⑤ Int. Cl.⁶:
H 01 M 8/12

②	Aktenzeichen:	298 02 444.6
②	Anmeldetag:	12. 2. 98
④	Eintragungstag:	1. 4. 99
④	Bekanntmachung im Patentblatt:	12. 5. 99

DE 298 02 444 U 1

⑦ Inhaber:
Siemens AG, 80333 München, DE

⑤ Hochtemperatur-Brennstoffzelle und Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel

DE 298 02 444 U 1

Beschreibung

Hochtemperatur-Brennstoffzelle und Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel

5

Die Erfindung bezieht sich auf eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle mit einer oxidationsgeschützten Schutzschicht, auf eine Interkonnektorplatte und auf einen Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel.

10

Es ist bekannt, daß bei der Elektrolyse von Wasser die Wassermoleküle durch elektrischen Strom in Wasserstoff (H_2) und Sauerstoff (O_2) zerlegt werden. In einer Brennstoffzelle läuft dieser Vorgang in umgekehrter Richtung ab. Durch eine elektrochemische Verbindung von Wasserstoff (H_2) und Sauerstoff (O_2) zu Wasser entsteht elektrischer Strom mit hohem Wirkungsgrad und, wenn als Brenngas reiner Wasserstoff (H_2) eingesetzt wird, ohne Emission von Schadstoffen und Kohlendioxid (CO_2). Auch mit einem technischen Brenngas, beispielsweise Erdgas oder Kohlegas, und mit Luft (die zusätzlich mit Sauerstoff (O_2) angereichert sein kann) anstelle von reinem Sauerstoff (O_2) erzeugt eine Brennstoffzelle deutlich weniger Schadstoffe und weniger Kohlendioxid (CO_2) als andere Energieerzeuger, die mit fossilen Energieträgern arbeiten. Die technische Umsetzung des Prinzips der Brennstoffzelle hat zu unterschiedlichen Lösungen, und zwar mit verschiedenartigen Elektrolyten und mit Betriebstemperaturen zwischen 80 °C und 1000 °C, geführt.

30 In Abhängigkeit von ihrer Betriebstemperatur werden die Brennstoffzellen in Nieder-, Mittel- und Hochtemperatur-Brennstoffzellen eingeteilt, die sich wiederum durch verschiedene technische Ausführungsformen unterscheiden.

35 Bei dem aus einer Vielzahl von Hochtemperatur-Brennstoffzellen sich zusammensetzenden Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel (in der Fachliteratur wird ein Brennstoffzellenstapel



auch "Stack" genannt) liegen unter einer oberen Verbundleiterplatte, welche den Hochtemperatur-Brennstoffzellenstapel abdeckt, der Reihenfolge nach wenigstens eine Schutzschicht, eine Kontaktschicht, eine Elektrolyt-Elektroden-Einheit, eine weitere Kontaktschicht, eine weitere Verbundleiterplatte, usw.

Die Elektrolyt-Elektroden-Einheit umfaßt dabei zwei Elektroden und einen zwischen den beiden Elektroden angeordneten, als Membran ausgeführten Festelektrolyten. Dabei bildet jeweils eine zwischen benachbarten Verbundleiterplatten liegende Elektrolyt-Elektroden-Einheit mit den beidseitig an der Elektrolyt-Elektroden-Einheit unmittelbar anliegenden Kontaktschichten eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle, zu der auch noch die an den Kontaktschichten anliegenden Seiten jeder der beiden Verbundleiterplatten gehören. Dieser Typ und weitere Brennstoffzellen-Typen sind beispielsweise aus dem "Fuel Cell Handbook" von A. J. Appleby und F. R. Foulkes, 1989, Seiten 440 bis 454, bekannt.

Bei Stack-Versuchen und bei entsprechenden Modellversuchen stellte sich heraus, daß im Bereich der direkten Kontaktierung von einem Ni-Netz (als Kontakthilfe auf der Brenngasseite) und Interkonnektorplatte ($\text{CrFe}_5\text{y}_2\text{O}_{3,1}$), die auch als Verbundleiterplatte bezeichnet wird, nach kurzer Betriebsdauer ein hoher Serienwiderstand von mehreren 100 m Ohm cm^2 auftritt. Entsprechende Untersuchungen haben ergeben, daß im direkten Kontaktbereich Ni-Netz/ CrFe_5 eine Oxidschicht aufwächst, die im nicht stoffschlüssigen Kontakt aus Cr_2O_3 (Cr_xO_y) und im stoffschlüssigen Kontakt wahrscheinlich aus einem CrNi -Spinell besteht. Diese Oxidschichten sind verantwortlich für die zu hohen Serienwiderstände der SOFC. Die elektrische Leistung wird stark negativ beeinflusst.

Ein entsprechendes „Komplettkontaktieren“ des Netzes auf der Interkonnektorplatte ist nur sehr schwierig zu realisieren. Für die Bildung dieser Oxidschichten reichen bereits Sauer-

stoffpartialdrücke von ca. 10^{-15} bar aus; diese Drücke sind beim normalen Betrieb der SOFC (Hochtemperatur-Brennstoffzelle) immer gegeben.

5 Wie wurde das Problem bisher gelöst?

Bisher wurde ein Ni-Netz an etwa 9 Punkten mittels Elektroschweißverfahren an der Interkonnectorplatte auf der Brenngasseite angepunktet. Dies ist nur ein verschwindend geringer Bruchteil der eigentlichen Kontakt ($< 0,001\%$). Der Rest der Druckkontakte liegt auf der sich bildenden Oxidschicht, die mit fortlaufendem Betrieb nach einem parabolischen Gesetz einwächst.

15 Wie soll das Problem jetzt gelöst werden?

- Verwendung einer oxidationsgeschützten Schutzschicht, die dicht (gasdicht) auf der Brenngasseite auf die Interkonnectorplatte aufgetragen wird.

20

- Verwendung einer Chromcarbid-Schicht,
z.B. Cr_3C_2 , CrC , Cr_7C_3 etc.
 Cr_{23}C_6 .

25 Diese Schichten sind in hohem Maße elektrisch leitend, was notwendig ist für den Einsatz in der SOFC auf der Interkonnectorplatte.

30 Diese Schichten sind sehr korrosionsbeständig gegen entsprechende Sauerstoffpartialdrücke auf der Brenngasseite. Diese Schichten sind stabil unter Verwendung von Methan bzw. kohlestämmigen Gasen (was spätere Einsatzmedien auf der Brenngasseite der SOFC sind)

35 Auftragsmethoden:

12.02.98

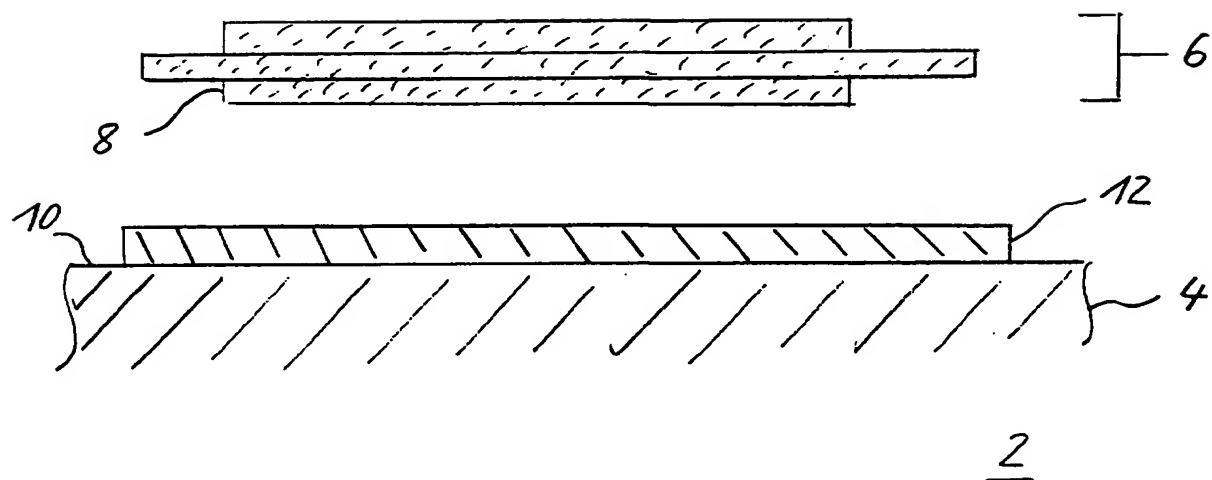
4

Aufputtern von Cr_3C_2 in reinem Argon oder durch ein CVD-Verfahren. Die Schichten weisen vorzugsweise eine Dicke zwischen 5 und $10\mu\text{m}$ auf.

Schutzansprüche

1. Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) mit wenigstens einer Verbundleiterplatte (4) und einer Elektrolyt-Elektroden-Einheit (6),
5 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß auf der der Anode (8) der Elektrolyt-Elektroden-Einheit (6) zugewandten Seite (10) der Verbundleiterplatte (4) ein Mittel (12) zum Erniedrigen des elektrischen Serienwiderstands der Hochtemperatur-Brennstoffzelle (2) angeordnet ist.
- 10 2. Hochtemperatur-Brennstoffzelle nach Anspruch 1,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß als Mittel eine Chromcarbid Cr_xC_y enthaltende Schicht vorgesehen ist.
- 15 3. Hochtemperatur-Brennstoffzelle nach Anspruch 2,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß als Chromcarbid Cr_3C_2 , CrC , Cr_7C_3 oder Cr_{23}C_6 verwendet wird.
- 20 4. Hochtemperatur-Brennstoffzelle nach Anspruch 2 oder 3,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß die Schicht eine Dicke zwischen 5 und $10\mu\text{m}$ aufweist.

17.04.98



FIG

